

12) NACH DEM VERTRAG LAGER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 8. März 2001 (08.03.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer $WO\ 01/15528\ A1$

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: A01N 31/04, 31/02

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/08381

(22) Internationales Anmeldedatum:

28. August 2000 (28.08.2000)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität: 199 40 605.7 27. August 1999 (27.08.1999) DI

(71) Anmelder und

(72) Erfinder: SCHÜR, Jörg [DE/DE]; Heideweg 51, 41844 Wegberg-Dalheim (DE).

(74) Anwälte: HELBING, Jörg usw.; Von Kreisler Selting Werner, P.O. Box 10 22 41, 50462 Köln (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU,

CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM. HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- Mit internationalem Recherchenbericht.
- Vor Ablauf der f
 ür Änderungen der Anspr
 üche geltenden
 Frist; Ver
 öffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen
 eintreffen.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: IMPREGNATION METHOD

(54) Bezeichnung: IMPRÄGNIERUNGSVERFAHREN

(57) Abstract: The invention relates to a method for impregnating, incorporating or surface-treating substances/articles that can be microbially decomposed, contaminated and/or infested with parasites and/or that are perishable. The inventive method comprises the following steps: applying a special antimicrobial/antiparasite composition on the substances/articles or incorporating the antimicrobial/antiparasite composition in the substances. The invention further relates to said special antimicrobial/antiparasite compositions, to their use for impregnating and/or surface-treating substances that can be microbially decomposed, contaminated and/or that are perishable or substances that are infested with parasites and to the use thereof in substances and products that have to be self-contaminating.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Imprägnierung, Einarbeitung oder Oberflächenbehandlung von mikrobiell abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen bzw. parasitär befallenen Substanzen/Gegenstände, umfassend das Auftragen einer speziellen antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung auf die Substanzen/Gegenstände oder das Einarbeiten der antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung in die Substanzen, diese speziellen antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzungen, deren Verwendung zur Imprägnierung bzw. Oberflächenbehandlung von mikrobiologisch abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen bzw. parasitär befallenen Substanzen sowie deren Verwendung in Substanzen und Produkten, die selbstkontaminierend sein müssen.



, ,

Imprägnierungsverfahren

5

10

15

20

25

30

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Imprägnierung, Einarbeitung oder Oberflächenbehandlung von mikrobiell abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen bzw. parasitär befallenen Substanzen/Gegenstände, umfassend das Auftragen einer speziellen antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung auf oder das Einarbeiten der antimikrobiel-Substanzen/Gegenstände die len/antiparasitären Zusammensetzung in die Substanzen, diese speziellen antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzungen, deren Verwendung zur Imprägnierung bzw. Oberflächenbehandlung von mikrobiologisch abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen bzw. parasitär befallenen Substanzen sowie deren Verwendung in Substanzen und Produkten, die selbstkontaminierend sein müssen.

Die Imprägnierung und Oberflächenbehandlung von mikrobiologisch und parasitär empfindlichen, d.h. kontaminierbaren, abbaubaren und/oder verderblichen Substanzen und Gegenstände ist ein grundsätzliches Problem bei der industriellen Verarbeitung solcher Substanzen und Gegenstände (wie z. B. Holz und Holzprodukte, Textilien und textile Rohstoffe, verkeimungsgefährdete Kunststoffe, Dämm- und Dichtungsstoffe). Ebenso ist die Selbstdekontamination von Reinigungsmittel oder Köprepflegemittel z. B. Deodorantien mit harmlosen Stoffen noch ausgesprochen problematisch.

Zum heutigen Zeitpunkt wird ein mikrobiologischer oder parasitärer Befall ausschließlich "toxisch" bekämpft, d. h. mit bakteriziden, fungiziden, viruziden, sporiziden, insektiziden Substanzen, die jedoch zum Großteil stark toxisch sind, so daß die Personen, die mit diesen so behandelten Produkten in Verbindung kommen gefährdet sind. Darüber hinaus bestehen auch Probleme bei der Entsorgung von mit solchen toxischen Substanzen bearbeiteter Produkten, Substanzen und Gegenstände.

Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung beruht darin, ein Imprägnierungs- oder Oberflächenbehandlungsverfahren zur Verfügung zu stellen, daß die Nachteile des Standes der Technik nicht aufweist.

5

10

15

20

Überraschenderweise wurde nun gefunden, daß spezielle antimikrobielle Zusammensetzungen, die als antimikrobielle Bestandteile zwei oder mehrere GRAS (Generally Recognized As Safe)-Aromastoffe enthalten (wie sie z.B. aus der WO-96/29895 und 98/58540 als Prozesshilfsmittel und Additive für Nahrungsmittel bekannt sind), auch sehr gute fungizide und antiparasitäre Eigenschaften aufweisen. Darauf aufbauend wurde gefunden, dass diese Zusammensetzungen sehr gut zur Imprägnierung und Oberflächenbehandlung von mikrobiell abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen/Gegenstände bzw. zur Einarbeitung in diese Substanzen/Gegenstände geeignet sind, ohne dabei das Toxizitätsproblem der herkömmlichen Imprägnierungs-, Oberflächenbehandlungs- oder Einarbeitungsmittel zu besitzen. Durch die Einarbeitung kann ein dekontaminierender Effekt des Produktes (falls vorhanden) verstärkt werden und somit bisher hierfür verwendete toxische Substanzen ersetzt werden. Insbesondere wurde gefunden, daß die benzylalkoholhaltigen Zusammensetzungen eine besonders hohe antimikrobielle und antiparasitäre Aktivität besitzen.

Gegenstand der vorliegenden Anmeldung ist demgemäß

- (1) ein Verfahren zur Imprägnierung und zur Behandlung von mikrobiell abbaubarer,
 kontaminierbarer und/oder verderblicher Substanzen oder parasitär befallener Substanzen, umfassend
 - das Verteilen oder Auftragen einer antimikrobiellen/antiparasitäre Zusammensetzung auf der Oberfläche der abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen und/oder
- 30 das Einarb

- das Einarbeiten der antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung in die abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen,

wobei die antimikrobielle Zusammensetzung wenigstens zwei GRAS(Generally Recognized As Safe)-Aromastoffe enthält;

10

15

20

25

30

- (2) eine bevorzugte Ausführungsform des eine weitere bevorzugte Ausführungs des in (1) definierten Verfahrens, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung eine oder mehrere GRAS(Generally Recognized As Safe)-Aroma-Alkohole oder deren Derivate (a) und einen oder mehrere Aromastoffe, ausgewählt aus Polyphenolverbindungen (b) und GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate (c),enthält;
- (3) eine weitere bevorzugte Ausführungsform des in (1) definierten Verfahrens, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung
- (i) wenigstens einen lipophilen GRAS(Generally Recognized As Safe)-Aromastoff und
 - (ii) wenigstens einen hydrophilen GRAS-Aromastoff enthält;
- (4) eine bevorzugte Ausführungsform des in (1) bis (3) definierten Verfahrens, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung den GRAS-Aroma-Alkohol Benzylalkohol als notwendigen Bestandteil enthält;
- (5) eine Zusammensetzung zur Imprägnierung oder Oberflächenbehandlung von mikrobiell abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen/Gegenstände oder parasitär befallener Substanzen/Gegenstände (d.h. ein Imprägnierungsmittel), umfassend eine antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung, wie in (1) bis (4) definiert;
- (6) eine Zusammensetzung zur Einarbeitung in mikrobiologisch abbaubare, kontaminierbare und/oder verderbliche Substanzen/Gegenstände oder in dem parasitären Befall zugängliche Substanzen/Gegenstände, umfassend eine antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung, wie in (1) bis (4) definiert;
- (7) die Verwendung der in (5) definierten Zusammensetzung zur Oberflächenbehandlung von mikrobiell abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen/Gegenstände von parasitär befallenen Substanzen/Gegenständen oder von Substanzen/Gegenstände, die selbstdekontminierend sein müssen; und
- (8) die Verwendung einer antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung, wie in
- (6) definiert, zur Einarbeitung in mikrobiologisch abbaubare, kontaminierbare und/oder verderbliche Substanzen/Gegenstände, in dem parasitären Befall zugängliche Substanzen/Gegenstände oder in Substanzen/Gegenstände, die selbstdekontaminierend sein müssen.

Unter "mikrobiell abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen/Gegenstände" im Sinne der vorliegenden Erfindung sind die folgenden natürlichen und/oder chemischen Materialien zu verstehen:

- Holz und Holzprodukte einschließlich Papier- und Korbwaren,
- 5 Textilien und textile Rohstoffe einschließlich Leder und Lederwaren,
 - Verkeimungsgefährdete Kunststoffe einschließlich Gummi,
 - Kosmetika und Produkte zur Körperpflege einschließlich Hygiene- und Verbandsprodukte,
 - natürliche und mineralische Dämm- und Dichtungsstoffe,
- 10 Baumaterialien aus mineralischen und natürlichen Stoffen,
 - Deodorantien.
 - Insektizide und Pestizide.
 - Filter,

20

25

30

- Erden und Düngemittel,
- 15 tierische Rohstoffe,
 - Farben und Lacke, Schmiermittel, Klebstoffe,
 - Waschmittel, Reinigungsmittel und andere Hygieneprodukte.

Unter "Imprägnieren, Einarbeiten oder Oberflächenbehandeln" wird dabei im Falle des Holzes sowohl ein Besprühen direkt nach dem Fällen der Bäume, ein Besprühen beim Zerkleinem (Sägen und Hobeln) durch kontinuierliche Zugabe zu der Zerkleinerungsvorrichtung, eine Behandlung des zerkleinerten Materials, z.B. während des Transportes, eine Druckimprägnierung des verarbeiteten Produktes als auch die langfristige Pflege durch Auftragen von Ölen und Anstrichen verstanden. Bei Zellstoffen und Papier bedeutet Imprägnieren die Behandlung des Produktes während der Verarbeitung, z.B. durch Zugabe bei der Herstellung dieser Produkte als auch eine anfängliche Oberflächenbehandlung bei oder während der Installation der Geräte. Darüber hinaus kann z.B. bei Luftfilter auch durch eine spätere Oberflächenbehandlung die Standzeit weiter verlängert werden. Coatings von natürlichen und/oder chemischen Materialien können entweder durch Zugabe des Imprägnierungsmittels bei dem Herstellungsverfahren oder durch spätere Oberflächenbehandlung imprägniert werden. Darüber hinaus kann Imprägnieren im Sinne der vorliegenden Erfindung ebenfalls die Zugabe der antimikrobiellen Zusammensetzung zu Farben und

15

20

25

30

Lacken bedeuten. Eine Oberflächenentkeimung oder Imprägnierung findet insbesondere durch Sprühen, Tauchen, Vernebeln, Abwaschen und Wischen statt. Dies kann mit oder ohne Druck, bei Raumtemperatur oder heiß erfolgen.

5 Im folgenden werden die erfindungsgemäß einsetzbaren Stoffe im einzelnen näher beschrieben:

Die vorstehend in (1) bis (4) genannten GRAS-Aromastoffe, GRAS-Aroma-Alkohole und GRAS-Aromasäuren sind von der FDA-Behörde zur Verwendung in Nahrungsmitteln als gewerbesicher anerkannt (GRAS = Generally Recognized As Safe In Food). Bei den erwähnten GRAS-Aromastoffen handelt es sich um solche Verbindungen, die in FEMA/FDA GRAS Flavour Substances Lists GRAS 3-15 Nr. 2001-3815 (Stand 1997) genannt sind. In dieser Liste sind natürliche und naturidentische Aromastoffe aufgeführt, die von der amerikanischen Gesundheitsbehörde FDA zur Verwendung in Nahrungsmitteln zugelassen sind: FDA Regulation 21 CFR 172.515 für naturidentische Aromastoffe (Synthetic Flavoring Substances and Adjuvants) und FDA Regulation 21 CFR 182.20 für natürliche Aromastoffe (Natural Flavoring Substances and Adjuvants). Geeignete GRAS-Aromastoffe gemäß der vorliegenden Erfindung sind z. B. (a) GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate, (b) Polyphenolverbindungen, (c) GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate, (d) Phenole oder deren Derivate, (e) Ester, (f) Terpene, (g) Acetale, (h) Aldehyde und (i) etherische Öle.

Im einzelnen können beispielsweise folgende GRAS-Aroma-Alkohole (a) zum Einsatz kommen:

Benzylalkohol, Acetoin (Acetylmethylcarbinol), Ethylalkohol (Ethanol), Propylalkohol (1-Propanol), iso-Propylalkohol (2-Propanol, Isopropanol), Propylenglykol, Glycerin, n-Butylalkohol (n-Propylcarbinol), iso-Butylalkohol (2-Methyl-1-propanol), Hexylalkohol (Hexanol), L-Menthol, Octylalkohol (n-Octanol), Zimtalkohol (3-Phenyl-2-propen-1-ol), α-Methylbenzylalkohol (1-Phenylethanol), Heptylalkohol (Heptanol), n-Amylalkohol (1-Pentanol), iso-Amylalkohol (3-Methyl-1-butanol), Anisalkohol (4-Methoxybenylalkohol, p-Anisalkohol), Citronellol, n-Decylalkohol (n-Decanol), Geraniol, β-γ-Hexanol (3-Hexenol), Laurylalkohol (Dodecanol), Linalool, Nerolidol, Nonadienol

(2,6-Nonadien-1-ol), Nonylalkohol (Nonanol-1), Rhodinol, Terpineol, Borneol, Clineol (Eucalyptol), Anisol, Cuminylalkohol (Cuminol), 10-Undecen-1-ol, 1-Hexadecanol. Als Derivate können sowohl natürliche oder naturidentische Derivate als auch synthetische Derivate eingesetzt werden. Geeignete Derivate sind z. B. die Ester, Ether und Carbonate der vorstehend genannten GRAS-Aroma-Alkohole. Besonders bevorzugte GRAS-Aroma-Alkohole sind die aromatischen GRAS-Aroma-Alkohole der vorstehenden Liste (hiervon besonders bevorzugt ist Benzylalkohol), 1-Propanol, Glycerin, Propylenglycol, n-Butylalkohol, Citronellol, Hexanol, Linalool, Acetoin und

PCT/EP00/08381

10

30

Als Komponente (b) können die folgenden Polyphenole eingesetzt werden: deren Derivate. Brenzcatechin, Resorcin, Hydrochinon, Phloroglucin, Pyrogallol, Cyclohexan, Resveratrol, Usninsäure, Acylpolyphenole, Lignine, Anthocyane, Flavone, Catechine, Gallussäurederivate (z. B. Tannine, Gallotannin, Gerbsäuren, Gallus-Gerbsäuren), Carnosol, Carnosolsäure (einschließlich deren Derivate wie (2,5-Dihydroxyphenyl)carboxyl- und (2,5-Dihydroxyphenyl)alkylencarboxylsubstitutionen, Salze, Ester, Amide), Kaffesäure und deren Ester und Amide, Flavonoide (z. B. Flavon, Flavonol, Isoflavon, Gossypetin, Myrecetin, Robinetin, Apigenin, Morin, Taxifolin, Eriodictyol, 15 Naringin, Rutin, Hesperidin, Troxerutin, Chrysin, Tangeritin, Luteolin, Catechine, Quercetin, Fisetin, Kaempferol, Galangin, Rotenoide, Aurone, Flavonole, Diole), Extrakte aus z. B. Camellia Primula. Weiterhin können auch deren mögliche Derivate, z. B. Salze, Säuren, Ester, Oxide und Ether verwendet werden. Das besonders 20 bevorzugte Polyphenol ist Tannin (eine GRAS-Verbindung).

Als Komponente (c) können beispielsweise folgende GRAS-Säuren zum Einsatz 25 kommen:

Essigsäure, Aconitsäure, Adipinsäure, Ameisensäure, Apfelsäure (1-Hydroxybernsteinsäure), Capronsäure, Hydrozimtsäure (3-Phenyl-1-propionsäure), Pelargonsäure (Nonansäure), Milchsäure (2-Hydroxypropionsäure), Phenoxyessigsäure Valeriansäure (Pentansäure), iso-Valeriansäure (3-Methylbutansäure), Zimtsäure (3-Phenylpropensäure), Citronensäure, Mandelsäure (Hydroxyphenylessigsäure), Weinsäure (2,3-Di-(Glykolsäurephenylether),

10

15

20

25

30

hydroxybutandisäure; 2,3-Dihydroxybernsteinsäure), Fumarsäure, Tanninsäure und deren Derivate.

Geeignete Derivate der GRAS-Aromasäuren im Sinne der vorliegenden Erfindung sind Ester (z. B. C₁₋₆-Alkylester und Benzylester), Amide (einschließlich N-substituierte Amide) und Salze (Alkali-, Erdalkali- und Ammoniumsalze der vorstehend genannten Säuren zu verstehen. Ebenfalls umfassen Derivate im Sinne der vorliegenden Erfindung Modifikationen der Seitenketten-Hydroxyfunktionen (z. B. Acyl- und Alkylderivate) und Modifikationen der Doppelbindungen (z. B. die perhydrierten und hydroxilierten Derivate der genannten Säuren).

Als Komponente (d) können folgende Phenolverbindungen zum Einsatz kommen: Thymol, Methyleugenol, Acetyleugenol, Safrol, Eugenol, Isoeugenol, Anethol, Phenol, Methylchavicol (Estragol; 3-4-Methoxyphenyl-1-propen), Carvacrol, α-Bisabolol, Fornesol, Anisol (Methoxybenzol) und Propenylguaethol (5-Prophenyl-2-ethoxaphenol) und deren Derivate. Derivate im Sinne der vorliegenden Erfindung sind Verbindungen, in denen die phenolische Hydroxylgruppe verestert oder verethert ist.

Als GRAS-Ester (Komponente (e)) kommen beispielsweise Allicin und die folgenden Acetate Iso-Amylacetat (3-Methyl-1-butylacetat), Benzylacetat, Benzylphenylacetat, n-Butylacetat, Cinnamylacetat (3-Phenylpropenylacetat), Citronellylacetat, Ethylacetat (Essigester), Eugenolacetat (Acetyleugenol), Geranylacetat, Hexylacetat (Hexanylethanoat), Hydrocinnamylacetat (3-Phenyl-propylacetet), Linalylacetat, Octylacetat, Phenylethylacetat, Terpinylacetat, Triacetin (Glyceryltriacetat), Kaliumacetat, Natriumacetat und Calciumacetat zum Einsatz. Weitere geeignete Ester sind die Esterderivate der vorstehend definierten Säuren (Komponente (c)).

Als Terpene (Komponente (f)) kommen z. B. Campher, Limonen und ß-Caryophyllen in Betracht.

Zu den verwendbaren Acetalen (Komponente (g)) zählen z. B. Acetal, Acetaldehyddibutylacetal, Acetaldehyddipropylacetal, Acetaldehydphenethylpropylacetal, Zimtal-

WO 01/15528 PCT/EP00/08381

8

dehydethylenglycolacetal, Decanaldimethylacetal, Heptanaldimethylacetal, Heptanalgiycerylacetal und Benzaldehydpropylenglykolacetal.

Als Aldehyde (Komponente (h)) sind z. B. Acetylaldehyd, Anisaldehyd, Benzaldehyd, iso-Butylaldehyd (Methyl-1-propanal), Citral, Citronellal, n-Caprinaldehyd (n-Decanal), Ethylvanillin, Fufurol, Heliotropin (Piperonal), Heptylaldehyd (Heptanal), Hexylaldehyd (Hexanal), 2-Hexenal (ß-Propylacrolein), Hydrozimtaldehyd (3-Phenyl-1-propanal), Laurylaldehyd (Docdecanal), Nonylaldehyd (n-Nonanal), Octylaldehyd (n-Octanal), Phenylacetaldehyd (1-Oxo-2-phenylethan), Propionaldehyd (Propanal), Vanillin, Zimtaldehyd (3-Phenylpropenal), Perillaaldehyd und Cuminaldehyd verwendbar.

5

10

15

Erfindungsgemäß einsetzbar sind beispielsweise auch die im folgenden aufgeführten etherischen Öle und/oder die alkoholischen, glykolischen oder durch CO₂-Hochdruckverfahren erhaltenen Extrakte aus den genannten Pflanzen (Komponente (i)):

- (i1) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Alkoholen: Melisse, Koriander, Kardamon, Eukalyptus;
- (i2) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Aldehyden: Eukalyptus citriodora, Zimt,
 Zitrone, Lemongras, Melisse, Citronella, Limette, Orange;
 - (i3) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Phenolen: Oreganum, Thymian, Rosmarin, Orange, Nelke, Fenchel, Campher, Mandarine, Anis, Cascarille, Estragon und Piment;
 - (i4) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Acetaten: Lavendel;
- 25 (i5) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Estern: Senf, Zwiebel, Knoblauch;
 - (i6) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Terpenen: Pfeffer, Pomeranze, Kümmel, Dill, Zitrone, Pfefferminz, Muskatnuß.

Eine bevorzugte Ausführungsform der antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung (1) enthält wenigstens einen GRAS-Aroma-Alkohol (a), insbesondere Benzylalkohol. Dabei sind solche Zusammensetzungen bevorzugt, die weniger als 50 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 30 Gew.-%, besonders bevorzugt weniger als 20

ĺ

9

Gew.-%, Ethanol, Isopropanol oder Benzylalkohol oder eines Gemisches dieser. Stoffe enthalten.

In einer anderen bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung enthält die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung wenigstens einen hydrophilen, alkoholischen GRAS-Aromastoff und/oder einen hydrophilen, nichtalkoholischen GRAS-Aromastoffe darf bis zu 99 Gew.-% der Zusammensetzung betragen und beträgt vorzugsweise 30 bis 98 Gew.-%, besonders bevorzugt 80 bis 95 Gew.-%. Der Anteil der hydrophilen, nichtalkoholischen GRAS-Aromastoffe in der insektiziden Zusammensetzung darf bis zu 90 Gew.-% betragen und beträgt vorzugsweise 0,1 bis 50 Gew.-%. Dabei sind solche Zusammensetzungen bevorzugt, die neben den genannten hydropilen Verbindungen weiterhin Benzylalkohol und/oder eine Polyphenolverbindung (b1) enthalten.

15

20

25

30

10

5

Hydrophile, alkoholische GRAS-Aromastoffe sind dabei einwertige oder mehrwertige Alkohole mit 2 - 10 C-Atomen, vorzugsweise mit 2 - 7 C-Atomen. Besonders bevorzugte Verbindungen sind 1-Propanol, Glycerin, Propylenglykol und Acetoin. Hydrophile, nichtalkoholische GRAS-Aromastoffe sind ausgewählt aus organischen Säuren mit 1 - 15 C-Atomen und physiologisch akzeptablen Salzen derselben, hydrophilen Acetaten und hydrophilen Aldehyden. Bevorzugte organische Säuren sind solche mit 2 - 10 C-Atomen und insbesondere Essigsäure, Acronitsäure, Ameisensäure, Apfelsäure, Milchsäure, Phenylessigsäure, Zitronensäure, Mandelsäure, Weinsäure, Fumarsäure, Tanninsäure, Hydrozimtsäure und deren physiologisch akzeptablen Salze. Das hydrophile Acetat ist vorzugsweise ausgewählt aus Allicin, Triacetin, Kaliumacetat, Natriumacetat und Calciumacetat und der hydrophile Aldehyd ist vorzugsweise ausgewählt aus Furfurol, Propionaldehyd und Vanillin.

Eine weitere bevorzugte antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung ist die vorstehend unter (2) angeführte Zusammensetzung. Die Zusammensetzung kann dabei 0,1 bis 99,9 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 99 Gew.-%, Komponente (a), 0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-%, Komponente (b) und

0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-%, Komponente (c) enthalten.

Die Komponente (a) enthält in dieser Ausführungsform der Erfindung einen oder mehrere GRAS-Aroma-Alkohole. Bevorzugt ist der Einsatz von zwei oder drei GRAS-Aroma-Alkoholen. Das Mischungsverhältnis der Komponente (a) zu Komponenten (b) liegt vorzugsweise zwischen 10.000 : 1 und 1 : 10.000, besonders bevorzugt zwischen 1000 : 1 und 1:1000 und ganz besonders bevorzugt zwischen 100 : 1 und 1 : 100.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens enthält die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung

- (a1) Benzylalkohol als notwendigen Bestandteil und gegebenenfalls
- 15 (a2) einen oder mehrere weitere GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate und
 - (b) eine oder mehrere Polyphenolverbindungen und/oder
 - (c) eine oder mehrere GRAS-Säuren oder deren Derivate.

Geeignete Mengen der Komponenten (a1), (a2), (b) und (c) sind dabei:

- 0,1 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 75 Gew.-% Benzylakohol;
 0 bis 99,8 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 99 Gew.-% Komponente (a2);
 0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-% Komponente (b) und/oder
 0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-% Komponente (c).
- Besonders bevorzugt in diesen Zusammensetzungen sind solche die zwingend eine Polyphenolverbindung (b) enthalten und optional noch eine oder mehrere GRAS-Säuren (c).

Die besonders bevorzugte antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung kann weiterhin noch die bereits erwähnten GRAS-Aromastoffe (d) bis (i) enthalten.

Der Anteil der Komponenten (d) - (i) in der antimikrobiellen/antiparasitäre Zusammensetzung ist vorzugsweise kleiner oder gleich 25 Gew.-% und liegt bevorzugt im

25

30



Bereich von 0,001 bis 9 Gew.-%. Bevorzugt unter den weiteren GRAS-Aromastoffen sind die Phenole (d) und etherische Öle (i).

11

In der in Ausführungsform (3) des erfindungsgemäßen Verfahrens eingesetzten Zusammensetzung sind die lipophilen GRAS-Aromastoffe vorzugsweise ausgewählt aus (a_i) lipophilen GRAS-Aroma-Alkoholen oder deren Derivate, (b) Polyphenolverbindungen, (c_i) lipophilen GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate, (d) Phenolen oder deren Derivate, (e_i) lipophilen Estern, (f) Terpenen, (g) Acetalen, (h_i) lipophilen Aldehyden und (i) etherischen Ölen. Die antimikrobielle Zusammensetzung enthält vorzugsweise zwei der genannten GRAS-Aromastoffe.

Geeignete lipophile GRAS-Aroma-Alkohole (a_i) aus den vorstehend definierten Alkoholen (a) sind dabei insbesondere:

aromatischen GRAS-Aroma-Alkoholen, umfassend Benzylalkohol, 2-Phenylethanol,
 1-Phenylethanol, Zimtalkohol, Hydrozimtalkohol, 1-Phenyl-1-Propanol und Anisalkohol und aliphatischen GRAS-Aroma-Alkoholen, umfassend n-Butylalkohol, iso-Butylalkohol, Hexylalkohol, L-Menthol, Octylalkohol, Heptylalkohol, n-Amylalkohol, iso-Amylalkohol, Anisalkohol, Citronellol, n-Decylalkohol, Geraniol, β-γ-Hexanol, Laurylalkohol, Linalool, Nerolidol, Nonadienol, Nonylalkohol, Rhodinol, Terpineol, Borneol,
 Clineol, Anisol, Cuminylalkohol, 10-Undecen-1-ol und 1-Hexadecanol und deren Derivate. Hierbei sind die aromatischen GRAS-Aroma-Alkohole uns insbesondere Benzylalkohol bevorzugt.

Im Sinne der vorliegenden Erfindung ist der hydrophile GRAS-Aromastoff ein hydrophiler, alkoholischer GRAS-Aromastoff (a_h) oder ein hydrophiler, nichtalkoholischer GRAS-Aromastoff ist, wobei der hydrophile, alkoholische GRAS-Aromastoff (a_h) ist - wie bereits vorstehend erwähnt - vorzugsweise ein einwertiger oder mehrwertiger Alkohol mit 2 bis 10, besonders bevorzugt mit 2 bis 7 C-Atomen ist, der insbesondere ausgewählt ist aus Acetoin, Ethylalkohol, Propylalkohol, iso-Propylalkohol, Propylenglykol und Glycerin. Der hydrophile, nichtalkoholische GRAS-Aromastoff ist vorzugsweise eine hydrophile organische GRAS-Aromasäure (c_h) mit 1 bis 15 C-Atomen oder ein physiologisches Salz derselben, ein hydrophiles Acetat (c_h) oder ein hydrophiler Aldehyd (c_h). Bevorzugte hydrophile organische Säuren (c_h)

10

25



sind dabei solche, die 2 bis 10 C-Atome aufweisen und insbesondere Essigsäure, Aconitsäure, Ameisensäure, Apfelsäure, Milchsäure, Phenylessigsäure, Citronensäure, Mandelsäure, Weinsäure, Fumarsäure, Tanninsäure, Hydrozimtsäure und deren physiologischen Salze. Das hydrophile Acetat (eh) ist vorzugsweise Allicin, Triacetin, Kaliumacetat, Natriumacetat und Calciumacetat. Der hydrophile Aldehyd (hh) ist vorzugsweise aus Furfurol, Propionaldehyd und Vanillin.

12

Die lipophile Polyphenolverbindung (b), Phenole oder deren Derivate (d), Terpene (f), Acetale (g) und etherischen Öle (i) in der Zusammensetzung des Verfahrens (3) sind dabei bevorzugt die vorstehend definierten Verbindungen (b), (d), (f), (g) und (i). Die lipophilen GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate (c_i), lipophilen Ester (e_i) und lipophilen Aldehyde umfassen alle spezifisch genannten Säuren, Ester und Aldehyde mit Ausnahme der vorstehend spezifisch genannten Verbindungen (c_h), (e_h) und (h_h).

- 15 In bevorzugter Ausführungsform des Verfahrens (3) enthält die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung entweder
 - (i) zwei lipophile GRAS-Aroma-Alkohole (a_i), jedoch kein Benzylalkohol und keine Polyphenolverbindungen (b) oder
- (ii) Benzylalkohol und/oder eine Polyphenolverbindung (b), jedoch keine weiteren 20 GRAS-Aroma-Alkohole.

Hierbei ist besonders bevorzugt, wenn die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung ausschließlich nichtalkoholische, hydrophile GRAS-Aromastoffe, insbesondere ausschließlich eine hydrophile GRAS-Aromasäure (c_h) enthält und wenn die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung 0,01 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 90 Gew.-% Benzylalkohol oder Polyphenolverbindungen (b) und 0,01 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 30 Gew.-% hydrophile, nicht-alkoholische GRAS-Aromastoffe enthält.

- In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens (1) enthält die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung
 - (A) einen oder mehrere GRAS-Aroma-Alkohole (a) oder deren Derivate und

10

15

20

25

30



(B) einen oder mehrere Aromastoffe, ausgewählt aus Polyphenolverbindungen (b) und lipophile GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate (c).

13

Bevorzugt ist dabei, wenn die Zusammensetzung 0,1 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 99 Gew.-%, Komponente (a), 0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-%, Komponente (b) und 0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-%, Komponente (c) enthält.

Daneben kann die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung weitere GRAS-Aromastoffe, ausgewählt aus (d) Phenolen oder deren Derivate, (e_i) lipophilen Estern, (f) Terpenen, (g) Acetalen, (h_i) lipophilen Aldehyden und (i) etherischen Ölen enthalten.

Weiterhin ist bevorzugt, wenn die die Komponente (A) der antimikrobiellen/antiparasitäre Zusammensetzung Benzylalkohol als notwendigen Bestandteil (a1) und gegebenenfalls einen oder mehrere weitere lipophile GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate (a_I) enthält. Vorzugsweise enthält diese antimikrobielle Zusammensetzung

0,1 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 75 Gew.-% Benzylalkohol;

0 bis 99,8 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 99 Gew.-% Komponente (a_I); und

0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-% Komponente (b),

0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-% Komponente (c).

Die hierbei eingesetzte Zusammensetzung kann weitere lipophile GRAS-Aromastoffe (d) - (i), wie vorstehend definiert, enthalten, vorzugsweise 0,001 bis 25 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,01 bis 9 Gew.-%, der weiteren GRAS-Aromastoffe (d) - (i). Diese weiteren lipophilen GRAS-Aromastoffe sind besonder bevorzugt Phenole (d) und/oder etherische Öle (i).

In einer weiteren besonders bevorzugten Ausführungsform des Verfahrens (3) besteht die Komponente (A) der antimikrobiellen/antiparasitäre Zusammensetzung aus zwei lipophilen GRAS-Aroma-Alkoholen und die Komponente (B) enthält wenigstens eine Polyphenolverbindung (b). Hierbei ist die Polyphenolverbindung (b) bevorzugt

Tannin, wobei eine Zusammensetzung, die 20 -98 Gew.-% Benzylalkohol und 0,01 - 10 Gew.-% Tannin enthält, besonders bevorzugt ist.

Besonders bevorzugt im Sinne der vorliegenden Erfindung sind antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzungen, deren antimikrobiell/antiparasitär wirksamer
Bestandteil ausschließlich aus GRAS-Aromastoffen besteht, d. h. keine "Derivate"
der GRAS-Aromastoffe enthält. Als Beispiel einer solchen Zusammensetzung ist ein
Gemisch aus Benzylalkohol, einem oder zwei der vorstehend genannten GRASAroma-Alkohole (a2) und Tannin zu nennen. Dieses Gemisch enthält dabei vorzugsweise 0.1 bis 98 Gew.-% Benzylalkohol und 0.01 - 10 Gew.-%, vorzugsweise 1 10 Gew.-%, Tannin. Ein weiteres Beispiel einer bevorzugten Zusammensetzung ist
ein Gemisch aus 2 Alkoholen, einem Polyphenol (insbesondere Tannin) und einem
etherischen ÖI (insbesondere einem phenolischen etherischen ÖI, Komponente (i3)).

5

10

25

Neben den Komponenten (a) bis (i) können zusätzlich noch weitere Verbindungen (j) wie Alkohole (j1) Emulgatoren (j2), Stabilisatoren (j3), Antioxidantien (j4), Konservierungsmittel (j5), Lösemittel (j6), Trägerstoffe (j7) etc. eingesetzt werden.

Der Anteil der Komponenten (j) an der antimikrobiellen/parasitären Zusammensetzung darf bis 95 Gew.-% betragen, ist vorzugsweise kleiner als 10 Gew.-% und liegt bevorzugt im Bereich von 0,1 bis 5 Gew.-%.

Bei den Alkoholen (j1) handelt es sich erfindungsgemäß um einwertige oder mehrwertige Alkohole mit 2 bis 10 C-Atomen, vorzugsweise mit 2 bis 7 C-Atomen, wobei die GRAS-Alkohole (a) hiervon nicht umfaßt sind. Vorzugsweise werden solche Mengen an GRAS-Aroma-Alkoholen (a) und weiteren Alkoholen (j1) eingesetzt, daß deren Mischungsverhältnis zwischen 1000: 1 und 1: 1000, insbesondere zwischen 100: 1 und 1: 100 und besonders bevorzugt zwischen 10: 1 und 1: 10 liegt.

30 Besonders bevorzugt in dem erfindungsgemäßen Verfahren ist die Verwendung von Systemen, die ausschließlich aus GRAS-Aromastoffen bestehen, insbesondere dann wenn die behandelten Produkte mit Nahrungsmitteln, in Verbindung kommen, da hierdurch auch die Gefahr der Nahrungsmittel durch Nicht-GRAS-Verbindungen un-



terbunden wird. Weiterhin sollte darauf geachtete werden, daß die antimikrobielle Zusammensetzung frei von Ethanol und Isopropanol ist bzw. frei von bedenklichen Dosierungen von Ethanol und Isopropanol ist, da diese Stoffe von den Personen, die die Imprägnierung vornehmen, eingeatmet werden können. Darüber hinaus kann bei der Verwendung dieser Verbindungen Explosionsgefahr bestehen.

15

Schließlich betrifft die Erfindung auch Substanzen/Gegenstände/Produkte, die durch das erfindungsgemäße Verfahren oberflächenbehandelt wurden bzw. in die die antiparasitäre/antimikrobielle Zusammensetzung eingearbeitet wurde.

10

5

Durch das erfindungsgemäße Verfahren kann ein wirksamer Schutz gegen die nachfolgend beschriebenen Mikroorganismen bzw. Parasiten erfolgen:

Schimmelpilze: Mehltauarten, Rostpilze, Blattfleckenpilze, Fusarium-Arten, Aspergillus-Arten, Penicillium-Arten, Rhizoctonia, Peronaspora, Phytophtora, Botrytis cinerea, Rhizoctonia solani, Aspergillus Ocraceus, Aspergillus Niger, Clavosporium Fusarium, Penicillium.

Parasiten: Lepidopteren (Chilo suppressalis, Chaphalocrosis medinalis, Ostrina nubilalis), Myzus persicae, (springende) Insekten, Tabakkäfer, Milben, Blattläuse, Fliegen, Motten.

<u>Viren:</u> Tomatenmosaikvirus, X-Virus, Y-Virus, Rice Stripe Virus, TYM-Virus, Rizomania, BNYVV.

25

Spezielle Pilze/Parasiten, die mit dem erfindungsgemäßen Verfahren unterdrückt werden können sind in der folgenden Tabelle zusammengefaßt:

Name	Frühere und deutsche Namen	Bedeutung
Amylostereum areolatum	Stereum areolatum	Rostreifigkeit
	Braunfilziger Schichtpilz	

WO 01/15528		PCT/EP00/08381	
	16		
Antrodia vallantii	Poria vaillanti	Häufigster Porenhaus-	_
	Breitsporiger weißer Poren-	schwamm	
	schwamm		
Armillaria mellea	Honiggelber Hallimasch	Parasit	
Aspergillus niger	Schwarzer Gießkannenschim-	"Schwarzschimmel"	
	mel		
Aspergillus flavus		Aflatoxine	
Aureobasidium pullulans	Pullularia pullulans	Anstrichbläue	
Bispora antenna	Bispora monilioides	Schwarzstreifigkeit	
Ceratocystis fagacearum		Eichenwelke	
Ceratocystis fimbriata f.		Platanenwelke	
platani	4		
Chaetomium globosum		Moderfäule, Prüfpilz	
Chlorociboria aerugina-	Chlorosplenium aeruginascens	"Grünfäule"	
scens	Kleinsporiger Grünspanbecher-		
	ling		
Cladosporium spp.		Schnittholzbläue	1
Coniophora puteana	Coniophora cerebella	Prüfpilz EN 113	1
	Kellerschwamm		ŀ
Daedalea quercina	Lenzites quercina	Eichenkernholzabbau	
	Eichenwirding		
Discula pinicola phonectria	Endothia parasitica	 Kastanienrindenkrebs	l
parasitica			
Fomes fomentarius	Polyporus fomentarius	Parasit	
Gloeophyllum abietinum	Lenzites abietina	Fensterholzzerstörer	l
	Tannenblättling	*	
Gloephyllum sepiarium	Lenzites sepiaria		
	Zaunblättling		
Gloephyllum trabeum	Lenzites trabea	Prüfpilz EN 113	
	Balkenblättling		
Heterobasidion annosum	Fomes annosus	Rotfäule	
			i



	17	
	Wurzelschwamm	
Laetiporus sulphureus	Polyporus sulphureus	Parasit
	Schwefelporling	
Lentinus lepideus	Schuppiger Sägeblättling	Teerölresistenz, EN 113
Meripilus giganteus	Riesenporling	Parasit Straßenbäume
Nectaria coccinea		Buchenrindennekrose
Ophiostoma minus	Ceratocystis minor	Stammholzbläue
Ophiostoma piceae	Ceratocystis piceae	Stammholzbläue
Ophiostoma ulmi	Ceratocystis ulmi	
Paxillus panuoides	Muschelkrempling	Ulmensterben
Paecilomyces variotii		Grubenholzzerstörer
Penicillium spp.	Pinselschimmel	Moderfäule
Phaeolus spadiceus	Phaeolus schweinitzii	
	Kiefernbraunporling	Parasit
Phanerochaete chrysospo-	amorph:	
rium	Sporotrichum pulverulentum	Ligninabbau
	Goldsporiger Cystidenrinden-	·
	pilz	
Phellinus igniarius	Fomes igniarius	
	Grauer Feuerschwamm	Parasit
Phellinus pini	Trametes pini	
·	Kiefernfeuerschwamm	Parasit
Phlebiopsis gigantea	Phanerochaete gigantea	
	Großer Rindenpilz	Biologischer Forstschutz
Piptoporus betulinus	Polyporus betulinus	
	Birkenporling	Parasit
Polyporus squamosus	Schuppiger Porling	
Schizophyllum commune	Gemeiner Spaltblättling	Parasit
Serpula lacrymans	Merulius lacrymans	"Genetik Holzpilze"
	Echter Hausschwamm	
Serpula himantioides	Merulius silvester	
	Wilder Hausschwamm	·

"Rebhuhnfäule"

18			
Sparassis crispa	Krause Glucke		
Stereum sanguinolentum	Blutender Schichtpilz	Parasit	
		Wundfäule, Roststreifig-	
Trametes versicolor	Coriolus versicolor	keit	
	Schmetterlingsporling	Simultanfäule	
Trichaptum abietinum	Hirschioporus abietinus	Prüfpilz EN 113	
×	Tannentramete	Roststreifigkeit	
Trichoderma viride	Grüner Holzschimmel		
Tyromyces placenta	Postia, Oligoporus placenta	Cellulasen	
	Saftporling	Prüfpilz EN 113	
Xylobolus frustulatus	Stereum frustulosum		
	1	1	

	Kultur/Objekt	Schadenorganismus/Zweck
5	Nadelholz/Laubholz	freifressende Schmetterlingsraupen
	Laubholz	gemeiner Goldafter
	Nadelholz/Laubholz	Schwammspinner
	Nadelzolz/Laubholz	Nonne
	Nadelholz	Kiefernspinnet
10	Nadelholz	rotköpfiger Tannenwickler
	Nadelholz	großer brauner Rüsselkäfer
	Nadelholz/Laubholz	holzbrütender Borkenkäfer
	Nadelholz/Laubholz	rindenbrütender Borkenkäfer
	Nadelholz	Apfelrostmilbe
4.5		

Mosaikschichtpilz

15

20

Die Zusammensetzung zur Imprägnierung gemäß der vorliegenden Erfindung kann neben der vorstehend definierten antimikrobiellen Zusammensetzung noch Farbmittel, wie Farbstoffe und Pigmente, Dispergiermittel, Lösemittel, Härter, natürliche Holzschutzbiozide enthalten. Solche natürlichen Holzschutzbiozid und deren bevorzugter maximaler Gehalt in den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen sind in der nachfolgenden Tabelle gezeigt:

	Eingesetzte Biozide	max. Gehalt in %
	Buchenholzteeröl	29
5	Eichenrinde	1,0
	Fichtenholzdestillat	-
	Galgantwurzel	1,0
	Guajakholz	1,0
	Holzessig	10
10	Nadelholzteer	12,0
	Neemrinde	-
	Nelkenöl	· •
	Oreganum	1,0
	Wacholderholz	1,0
15	Wintergrünöl	.,,5

Der Anteil der antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung an der Zusammensetzung zur Imprägnierung, Oberflächenbehandlung oder Einarbeitung beträgt 0,001 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 10 Gew.-%.

20

Ein antimikrobieller Effekt kann dann beobachtet werden, wenn der Gehalt der antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung 0,001 bis 100 mg/g, vorzugsweise 0,1 bis 50 mg/g (bei der Einarbeitung oder Imprägnierung) bzw. 0,1 bis 50 g/m² (bei Oberflächenbehandlung) an behandeltem Substrat beträgt.

25

30

Mit der vorliegenden Erfindung wird somit ein für die Gesundheit unbedenkliches und umweltverträgliches Behandlungsverfahren bereitgestellt, das den jeweiligen mikrobiell abbaubaren, kontaminierten und/oder verderblichen Produkt angepaßt werden kann. Weitere bevorzugte antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzungen sind in den WO 96/29895 und WO 98/58540 genannt, auf deren Offenbarungsgehalt hier ausdrücklich Bezug genommen wird.

Die vorliegende Erfindung wird anhand der nachfolgenden Beispiele näher erläutert.



Beispiel

Die Produktschutzmittel (PSM) enthalten die folgenden Bestandteile (in Gew.-%):

PSM I: 5

- 10,0 % Polyphenol (hier: Tannin)
- 18,2 % Benzylalkohol
- 60,0 % Propylenglykol
- 8,0 % Milchsäure
- 3,8 % etherisches ÖI (hier: ein phenolhaltiges etherisches ÖI) 10

	- 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1	ii phenomatti	yes eur
	PSM II:		
	Benzylalkohol	50 %	a1
٠	Zimtaldehyd	50 %	g
15	PSM III		
	Benzylalkohol	50 %	a1
	Propylenglykol	50 %	b1
	PSM IV:		
20	a) Benzylalkohol	50 %	a1
	Polyphenol (Tannin)	50 %	b1
	b) Benzylalkohol	EO 0/	
	Polyphenol (Tannin)	50 %	a1
25		25 %	b1
23	Milchsäure	25 %	b2
	c) Benzylalkohol	25 %	a1
	Propylenglykol	50 %	a2
20	Polyphenol (Tannin)	25 %	b1
30	d) Benzylalkohol	25.0/	-4
		25 %	a1
	Propylenglykol	25 %	a2

PSM V:

35

			
	a) Propylenglykol	25 %	a2
	Glycerin	25 %	a2
	Milchsäure	25 %	b2
40	Tannin	25 %	b1
	b) Propylenglykol	50 %	a2
	Glycerin	25 %	b2
	Milchsäure	25 %	b2

Polyphenol (Tannin)

Milchsäure

25 %

25 %

b1

b2

PCT/EP00/08381

-

WO 01/15528

21

 c) Propylenglykol
 50 %
 a2

 Glycerin
 25 %
 b2

 Tannin
 25 %
 b1

5

Beispiel 1: Oberflächen-Selbstdekontamination

Anwendung: Behandlung von Arbeitsflächen, Transportbändern, etc.

Lebensmittelprodukt: z. B. Fleisch

Problematik: Keimanstieg durch anwachsende Biomasse

10 Dosierung: unverdünnt auf Flächen aufsprühen

Durchführung (auf Edelstahl-Arbeitstisch)

1. Arbeistfläche reinigen und desinifizieren (mit Alkohol 70%)

2. PSM I aufsprühen und abziehen

15 3. mit Rohfleisch kontaminieren

4. PSM I aufsprühen und abziehen

5. Probenahme

Der Vorgang wird in fünf Intervallen durchgeführt, Abstand 15 min.

20 Bakteriologie: Folgende Keime/Keimgruppen werden nach amtlichen Untersuchungsverfahren nach § 35 LMBG insoliert bzw. differenziert: GKZ, Enterobacteriaceen, Lactobacillen.

Probenahme: zwischen den Behandlungsintervallen.

25 <u>Auswertung</u>

30

Prüfobjekt: Oberfläche V₂A-Stahl, welche in regelmäßigen Abständen

mit einem Nackenkotelett kontaminiert wurde

Kontrolle Vor Versuchsbeginn Reinigung des Tisches und Desin-

fektion mit 70 % Alkohol

V₂A-Stahlfläche wurde in 15-min-Intervallen mit einem Nackenkotelett zum Aufbau einer Biomasse gewischt. Ab dem 2. Intervall wurde das Fleisch mit Wasser besprüht.

PCT/EP00/08381

WO 01/15528

22

PSM:

Einsprühen der Testfläche nach Reinigung und Desinfektion mit PSM I und mittels Gummischaber abgezogen.
Nach Kontamination mit dem Nackenkotelett wurde mit PSM besprüht und abgezogen, anschließend die Probe gezogen.

5

Rekontamination und Abzug erfolgte sofort danach.

Prüfmethode:

Eine Fläche von 100 cm² wurde mittels eines Abstriches

erfaßt.

Ergebnisse:

siehe Anlage

10 Kommentar:

PSM I ist in Kontamination mit der Anwendungstechnik in der Lage die GKZ (Gesamtkoloniezahl) um 10⁵, Enterobacteriaceen um 10² und Lactobacillen um 10⁵ auf kontaminierten Flächen zu reduzieren, d. h., Reduktionsfaktor 5

GKZ und Lactobacillen.

15

<u>Untersuchungsergebnisse</u>

	GKZ/Abstrich	Enterobacteriaceen/ Abstrich	Lactobacillen/ Abstrich
1. Kontamination ohne		, ,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,	Abstrict
Abziehen	6,7 x 10⁴	20	6,6 x 10⁴
6. Kontamination nach			0,0 X 10
Abziehen	$2,3 \times 10^3$	-	2.3×10^3
Kontrolle ohne PSM I			2,0 X 10
sofort	3,9 x 10⁵	5.5×10^{2}	3,8 x 10 ⁵
	$6,1 \times 10^3$	•	$5,3 \times 10^3$
nach 15 Minuten	$7,4 \times 10^3$	-	4.3×10^3
	1,43 x 10⁴	-	1,36 x 10⁴
nach 30 Minuten	3.2×10^3	-	2.1×10^3
	1,29 x 10⁴	10	1,09 x 10⁴
nach 45 Minuten	$6,4 \times 10^3$	-	3.8×10^3
	$8,1 \times 10^3$	-	6.8×10^3
nach 60 Minuten	7.8×10^3	-	$6,1 \times 10^3$
nech 75 te: .	3,6 x 10⁴	50	3,6 x 10⁴
nach 75 Minuten	7.6×10^3	-	7.4×10^3
nach 00 Min. i	1,93 x 10⁴	-	1,82 x 10⁴
nach 90 Minuten	5.8×10^3	-	5.3×10^3
Kontrolle mit PSM	1,25 x 10⁴	-	1,14 x 10⁴
sofort	40		
SOIOIT	10	-	-
nach 15 Minuten	-	-	-
ridori 13 minuten	-	-	-

WO 01/15528	PCT/EP00/08381

	-	-	-
nach 30 Minuten	-	-	-
	-	-	_
nach 45 Minuten	-	-	_
	-	-	_
nach 60 Minuten	-	-	_
	-	-	_
nach 75 Minuten	-	-	_
	_	-	_
nach 90 Minuten	-	•	_
	-	-	_

Beispiel 2: Quantitativer Suspensionsversuch gemäß DVG-Richtlinien

Produkt PSM I

Wirkungsprüfung: Imprägnierung, Oberflächenbehandlung, Einarbeitung, Dekontamination, Selbstdekontamination z. B. Deo, Farben, Lacke, Schmiermittel, Waschmittel, Hygienemittel

Prüfstamm (KBE/ml	Konz. in Vol	EWZ 60 min	Kontrolle	log RF
E. coli	8	0	980.000	
(1,1 · 10°)		0		
		0	980.000	> 4,99
	10	0	980.000	
		0		
		0	980.000	> 4,99
	12	0	980.000	
		0		
		0	980.000	> 4,99
Pa. fluorescens	8	0	2.800.000	
$(1,7 \cdot 10^9)$		0		
		0	2.800.000	> 5,45
	10	0	2.800.000	
		0		
·		0	2.800.000	> 5,45
	12	0	2.800.000	
		0		
		0	2.800.000	> 5,45

Staph. aureus	8	T 0	14 050 000	
(2,9 · 10°)	0	0 0	1.250.000	
(2,5 .6)		0	1.250.000	> F 10
	10	0	1.250.000	> 5,10
		Ö	1.250.000	
		O	1.250.000	> 5,10
	12	0	1.250.000	
		0		
		0	1.250.000	> 5,10
Salm. enteritidis	8	0	1.600.000	
$(1,7 \cdot 10^9)$		0		
	10	0	1.600.000	> 5,20
	10	0	1.600.000	
		0	4 000 000	
	12	0	1.600.000	> 5,20
	12	0	1.600.000	·
		0	1.600.000	5 20
List. monocytoge-	8	0	2.050.000	> 5,20
nes		Ö	2.050.000	
(1,5 · 10°)		O	2.050.000	> 5,31
	10	0	2.050.000	0,01
		0		
		0	2.050.000	> 5,31
	12	0	2.050.000	
		0		
Lactob. brevis		0	2.050.000	> 5,31
(9,3 · 10 ⁸)	8	1,540	1.140.000	
(9,5 10)		1,760	1 4 4 9 9 9 9	
	10	1,650	1.140.000	> 2,84
	. 10	0	1.140.000	
		0	1.140.000	> F 0G
	12	0	1.140.000	> 5,06
		Ö	1.140.000	
		Ö	1.140.000	> 5,06
Ent. serogenes	8	0	26.500	0,00
$(7,0\cdot 10^7)$		0		
		0	26.500	> 3,42
	10	0	26.500	
		0		
		0	26.500	> 3,42
	12	0	26.500	
Ì		0	20.500	
		0	26.500	> 3,42

Beispiel 3: Produktschutz Holz mit aufgelegtem Käse (Provokationstest)

Produkt PSM I - Oberflächenbehandlung und Imprägnierung von Holz

	Inhahandalt	Dobondolt	D-1-1-1			
		חבוומווחבוו	penandell	Start	Start	Lufffeuchtiakeit/
		PSM I gesprüht	PSM I getränkt	Schimmelwachst. Schimmelwachst	Schimmelwachst	Temperatur
		(Konzentration)	(Konzentration)	zw. Käse/Brett	nur Brett	
Fichte Leimholz	×			8. Tag nach Be-	19. Tag nach	85 %/15 °C
				handlung	Behandlung	
richte Leimholz		X (12,7 g/m²)				85 %/15 °C
Fichte Leimholz			X 60 a/m ²			0 0 1/0/ 00 0 0 1/1 °C
Firhte Vollhola	>					O3 7%/ 13 C
701110 4 211121	<			11. Tag nach Be-	20. Tag nach	85 %/15 °C
i				handlung	Behandlung	
Fichte Vollholz		X (18.5 a/m²)			D	000
Fighte Vollholz					•	85 %/15 °C
Bandkiroi	>		TRO g/m²	•	•	85 %/15 °C
Dangalica	<			6. Tag nach Be-	11. Tag nach	85 %/15 °C
				handlung	Behandlung	
Bangkirei*		X (5,1 g/m²)			D	05 0/ 145 00
* Tronenholz						O 21/0/ CO
7000000						

Alle mit PSM behandelten Bretter wiesen bis zum 35. Tag nach Behandlung kein Schimmelwachstum auf. Danach wurde der Versuch abgebrochen (Ende der Käsereifung).

WO 01/15528

26

Beispiel 4A: Produktschutz Holz mit aufgelegtem Käse (Provokationstest)

Produkt PSM II und III - Oberflächenbehandlung von Holz in Abhängigkeit der PSM-II- und -III-Konzentration

	Unbehandelt	Schimmelpilz- wachstum PSM II		Behandelt Schimmelpilz- wachstum PSM III		Luftfeuchtigkeit/ Temperatur
		100	50	100	50	
Fichte Leimholz	X ⁸	-	X ¹¹	2412		85 %/15 °C
				X ¹²		
Fichte Vollholz	X ¹¹	-	X ¹³	-		85 %/15 °C
				X ¹⁸		
Bangkirei	X ¹¹	-	X ¹⁵	-		85 %/15 °C
				X ¹⁴		

^{*} Tropenholz

5

- X: Schimmelpilzwachstum positiv (Index gibt an, an welchem Tag Schimmelwachstum zwischen Käse und Brett auftrat);
- Schimmelpilzwachstum negativ, bis zum 35. Tag nach Behandlung trat kein
 Schimmelwachstum auf. Danach wurde der Versuch abgebrochen (Ende der Käsereifung).

Dosierung PSM:

Fichte Leimholz

100: 15 g/m 2 PSM II oder III //50: 7,5 g/m 2 PSM II oder III

15 Fichte Vollholz

100: 20 g/m 2 PSM II oder III //50: 10 g/m 2 PSM II oder III

Bangkirei

100: 5 g/m² PSM II oder III //50: 2,5 g/m² PSM II oder III

Beispiel 4B: Produktschutz Holz mit aufgelegtem Käse (Provokationstest)

Produkt PSM IV - Oberflächenbehandlung von Holz

	Unbehan- delt	Beha PSM I	ande IV a 100	а	b	b	С	С	d	d	Luftfeuchtigkeit/ Temperatur
Fichte Leimholz	X ⁸		-	-	-	-	-	-	-	-	85 %/15 °C
Fichte Vollholz	X ¹¹		-	-	-	-	-	-	-	-	85 %/15 °C
Bangkirei	X ¹¹		-	-	- .	-	-	-	-	-	85 %/15 °C

^{*} Tropenholz

5

10

- X: Schimmelpilzwachstum positiv (Index gibt an, an welchem Tag Schimmelwachstum zwischen Käse und Brett auftrat);
- -: Schimmelpilzwachstum negativ, bis zum 35. Tag nach Behandlung trat kein Schimmelwachstum auf. Danach wurde der Versuch abgebrochen (Ende der Käsereifung).

Dosierung PSM IV:

Fichte Leimholz:

100: 15 g/m² IVa, b, c oder d//50: 7,5 g/m² IVa, b, c oder d

Fichte Vollholz:

100: 20 g/m² IVa, b, c oder d//50: 105 g/m² IVa, b, c oder d

15 Bangkirei:

100: 5 g/m² IVa, b, c oder d//50: 2,5 g/m² IVa, b, c oder d

Beispiel 4C: Produktschutz Holz mit aufgelegtem Käse (Provokationstest)

Produkt PSM V - Oberflächenbehandlung von Holz

20

		Behandelt Schimmelpilzwachstum PSM V a a b b c c 100 50 100 50 100 50	Luftfeuchtigkeit/ Temperatur
Fichte Leimholz	X ⁸	- X ²⁰ - X ¹⁰ - X ¹⁴	85 %/15 °C
Fichte Vollholz	X ¹¹	- X ²⁰ - X ¹⁰ - X ¹⁴	85 %/15 °C
Bangkirei	X ¹¹	- X ²⁰ - X ¹⁰ - X ¹⁴	85 %/15 °C

^{*} Tropenholz

WO 01/15528 PCT/EP00/08381

28

X: Schimmelpilzwachstum positiv (Index gibt an, an welchem Tag Schimmelwachstum zwischen Käse und Brett auftrat);

-: Schimmelpilzwachstum negativ, bis zum 35. Tag nach Behandlung trat kein Schimmelwachstum auf. Danach wurde der Versuch abgebrochen (Ende der Käsereifung).

Dosierung PSM V:

5

Fichte Leimholz 100: 15 g/m² Va, b oder c//50: 7,5 g/m² Va, b oder c

Fichte Vollholz 100: 20 g/m² Va, b oder c//50: 10 g/m² Va, b oder c

10 Bangkirei 100: 5 g/m² Va, b oder c//50: 2,5 g/m² Va, b oder c

Beispiel 5: Verhinderung des Schimmelwachstums durch Coating am Beispiel Käsereifung

15 Anwendung: Vorlage im Käsedeckmittel

Lebensmittelprodukt: Schnittkäse

Problematik: Schimmelwachstum während der Käsereifung

Dosierung: 2 % Gew. ad Coating (PSM I)

Probenzahl: jeweils 10 x 30 g O-Proben und -Proben

Durchführung:

20

Simulation in einem Klimaraum für Käsereifung

Temperatur: 15 °C, rel. Luftfeuchtigkeit: ca. 75 %

Behandlung von jeweils 8 Rohkäsen mit neutralem sowie PSM-I-Coating

25 Die Käse werden täglich gewendet.

Ziel/Ergebnis: Verminderung des Schimmelwachstums gegenüber der O-Probe während der Reifung

30 Visuelle Kontrolle: Schimmel und Hefen auf der Käseoberfläche

Probeaufnahme: Visuelle Kontrolle auf äußerliche Beschaffenheit, täglich

Auswertung

5 Auslagerungsergebnisse im Klimaraum K 43: 15 °C, 75 % rel. Feuchte

Einlagerung der Ziegenschnittkäse:

15.07. aus dem Salzbad

Coating

am 28.07. der eine Seite

am 29.08. der gegenüberliegenden Seite

danach anschließend tägliches Wenden und Kontrollieren.

10

20

Prüfung der Schimmelbealstung von K 34 mittels RCS-Gerät:

am 21.07.

210/m³

am 24.07.

65/m³

15 Ergebnisse der Versuchsreihe: visuelle Kontrolle auf Schimmelpilzen

Kontrolltag

n = 8, ohne PSM

n = 8, mit PSM

09.08.

4

0

10.08.

4

0

n = Anzahl der Käse

Kommentar: Die unbehandelten und behandelten Käse (PSM I im Coating) wurden unter den in den in einem Klimaraum möglichen Bedingungen (s. Prüfung Schimmelbelastung) gereift. Die Nullproben zeigten im Gegensatz zu den PSM-I-Proben ab dem 12. Reifetag visuell Schimmelwachstum.

PSM I Oberflächenbehandlung - Standzeiten

	Filter	PSM-Sprüh-	Dosierung	Schimmelpilze	Bakterien	
		mittel		§ 35 LMBG	§ 35 LMBG	
F-0		0-Probe	0	8 x 10 ⁵ /25 cm ²	10⁴/25 cm²	
F-1			0,1 g/m ²	$7 \times 10^3/25 \text{ cm}^2$	8 x 10 ¹ /25 cm ²	
F-2			1 g/m²	2 x 10 ² /25 cm ²	< 10	
F-3			10 g/m ²	< 10/25 cm ²	< 10	

Patentansprüche

- Verfahren zur Imprägnierung und zur Behandlung von mikrobiell abbaubarer, kontaminierbarer und/oder verderblicher Substanzen/Gegenstände oder parasitär befallener Substanzen/Gegenstände, umfassend
 - das Verteilen oder Auftragen einer antimikrobiellen/antiparasitäre Zusammensetzung auf der Oberfläche der abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen/Gegenstände und/oder
- das Einarbeiten der antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung in die
 abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen/Gegenstände,
 - wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung wenigstens zwei GRAS(Generally Recognized As Safe)-Aromastoffe enthält.
- Verfahren nach Anspruch 1, wobei die GRAS-Aromastoffe ausgewählt sind aus (a) GRAS-Aroma-Alkoholen oder deren Derivate, (b) Polyphenolverbindungen, (c) GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate, (d) Phenolen oder deren Derivate, (e) Estern, (f) Terpenen, (g) Acetalen, (h) Aldehyden und (i) etherischen Ölen.
- Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung wenigstens einen GRAS-Aroma-Alkohol (a), vorzugsweiseeinen aromatischen GRAS-Aroma-Alkohol und insbesondere Benzylalkohol, enthält.
- Verfahren nach Anspruch 3, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung weniger als 50 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 30 Gew.-%, besonders bevorzugt weniger als 20 Gew.-% Ethanol, Isopropanol oder Benzylalkohol oder eines Gemisches dieser Stoffe enthält.
- Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung wenigstens einen hydrophilen, alkoholischen GRAS-Aromastoff und/oder einen hydrophilen, nichtalkoholischen GRAS-Aromastoff enthält.

- 6. Verfahren nach Anspruch 5, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung weiterhin Benzylalkohol und/oder eine Polyphenolverbindung (b) enthält.
- Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung einen oder mehrere GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate (a) und einen oder mehrere Aromastoffe, ausgewählt aus Polypenolverbindungen (b) und GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate (c) enthält.
- Verfahren nach Anspruch 7, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammen setzung

0,1 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 99 Gew.-%, Komponente (a), 0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-%, Komponente (b) und 0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-%, Komponente (c) enthält.

15

- 9. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, wobei der GRAS-Aroma-Alkohol (a) ausgewählt ist aus:
- Benzylalkohol, Acetoin, Ethylalkohol, Propylalkohol, iso-Propylalkohol, Propylenglykol, Glycerin, n-Butylalkohol, iso-Butylalkohol, Hexylalkohol, L-Menthol, Octylalkohol, Zimtalkohol, α-Methylbenzylalkohol, Heptylalkohol, n-Amylalkohol, iso-Amylalkohol, Anisalkohol, Citronellol, n-Decylalkohol, Geraniol, β-γ-Hexanol, Laurylalkohol, Linalool, Nerolidol, Nonadienol, Nonylalkohol, Rhodinol, Terpineol, Borneol, Clineol, Anisol, Cuminylalkohol, 10-Undecen-1-ol, 1-Hexadecanol oder deren Derivate,
- 25 die Polyphenolverbindung (b) ausgewählt ist aus:

Brenzcatechin, Resorcin, Hydrochinon, Phloroglucin, Pyrogallol, Cyclohexan, Resveratrol, Usninsäure, Acylpolyphenolen, Ligninen, Anthocyane, Flavonen, Catechinen, Gallussäurederivaten, Kaffesäure, Flavonoiden, Derivaten der genannten Polyphenole und Extrakten aus Camellia Primula und

30 die GRAS-Säure (c) ausgewählt ist aus:

Essigsäure, Aconitsäure, Adipinsäure, Ameisensäure, Apfelsäure, Capronsäure, Hydrozimtsäure, Pelagonsäure, Milchsäure, Phenoxyessigsäure, Phenylessig-

säure, Valeriansäure, iso-Valeriansäure, Zimtsäure, Citronensäure, Mandelsäure, Weinsäure, Fumarsäure, Tanninsäure und deren Derivate.

- 10. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 7 bis 9, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung
- (a1) einen aromatischen GRAS-Aroma-Alkohol, insesondere Benzylalkohol als notwendigen Bestandteil und gegebenenfalls
 - (a2) einen oder mehrere weitere GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate und
 - (b) eine oder mehrere Polyphenolverbindungen und/oder
- 10 (c) eine oder mehrere GRAS-Säuren oder deren Derivate enthält.
 - 11. Verfahren nach Anspruch 10, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung
- 15 0,1 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 75 Gew.-% Benzylakohol;
 - 0 bis 99,8 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 99 Gew.-% Komponente (a2); und
 - 0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-% Komponente (b),
 - 0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-% Komponente (c) enthält.

20

5

12. Verfahren nach Anspruch 10 oder 11, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung eine oder mehrere Polyphenolverbindungen (b) als notwendigen Bestandteil und gegebenenfalls (c) eine oder mehrere GRAS-Säuren oder deren Derivate enthält.

25

13. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 7 bis 12, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung noch weitere GRAS-Aromastoffe, ausgewählt aus (d) Phenolen, (e) Estern, (f) Terpenen, (g) Acetalen, (h) Aldehyden und (i) etherischen Ölen, enthält.

30

14. Verfahren nach Anspruch 13, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung 0,001 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 9 Gew.-%, der weiteren GRAS-Aromastoffe (d) - (i) enthält.

30

- 15. Verfahren nach Anspruch 13 oder 14, wobei die weiteren GRAS-Aromastoffe Phenole (d) und/oder etherische Öle (i) sind.
- 5 16. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 15, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung keine Derivate der GRAS-Aromastoffe enthält.
- 17. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 10 bis 16, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung ein oder zwei GRAS-Aroma-Alkohole
 (a2) und wenigstens eine Polyphenolverbindung (b) enthält.
 - 18. Verfahren nach Anspruch 17, wobei die Polyphenolverbindung (b) Tannin ist.
- 15 19. Verfahren nach Anspruch 18, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung 0,1 98 Gew.-% Benzylaikohol und 0,01 10 Gew.-% Tannin enthält.
- 20. Verfahren nach Anspruch 1, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammen-20 setzung
 - (ii) wenigstens einen lipophilen GRAS(Generally Recognized As Safe)-Aromastoff und
 - (ii) wenigstens einen hydrophilen GRAS-Aromastoff enthält.
 - 21. Verfahren nach Anspruch 20, wobei die lipophilen GRAS-Aromastoffe ausgewählt sind aus (a_i) lipophilen GRAS-Aroma-Alkoholen oder deren Derivate, (b) Polyphenolverbindungen, (c_i) lipophilen GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate, (d) Phenolen oder deren Derivate, (e_i) lipophilen Estern, (f) Terpenen, (g) Acetalen, (h_i) lipophilen Aldehyden und (i) etherischen Ölen.

- 22. Verfahren nach Anspruch 20 oder 21, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung wenigstens zwei lipophile GRAS-Aromastoffe, vorzugsweise zwei lipophile GRAS-Aroma-Alkohole (a_I), enthält.
- 23. Verfahren nach Anspruch 21 oder 22, wobei die lipophilen GRAS-Aroma-Alkoholen hole ausgewählt sind aus: aromatischen GRAS-Aroma-Alkoholen, umfassend Benzylalkohol, 2-Phenylethanol, 1-Phenylethanol, Zimtalkohol, Hydrozimtalkohol, 1-Phenyl-1-Propanol und Anisalkohol und aliphatischen GRAS-Aroma-Alkoholen, umfassend n-Butylalkohol, iso-Butylalkohol, Hexylalkohol, L-Menthol, Octylalkohol, Heptylalkohol, n-Amylalkohol, iso-Amylalkohol, Anisalkohol, Citronellol, n-Decylalkohol, Geraniol, β-γ-Hexanol, Laurylalkohol, Linalool, Nerolidol, Nonadienol, Nonylalkohol, Rhodinol, Terpineol, Borneol, Clineol, Anisol, Cuminylalkohol, 10-Undecen-1-ol und 1-Hexadecanol und deren Derivate, wobei die aromatische GRAS-Aroma-Alkohole, insbesondere Benzylalkohol, bevorzugt sind.
- 24. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 20 bis 23, wobei der hydrophile GRAS-Aromastoff ein hydrophiler, alkoholischer GRAS-Aromastoff ist, wobei der stoff (ah) oder ein hydrophiler, nichtalkoholischer GRAS-Aromastoff ist, wobei der hydrophile, alkoholische GRAS-Aromastoff (ah) vorzugsweise ein einwertiger oder mehrwertiger Alkohol mit 2 bis 10, besonders bevorzugt mit 2 bis 7 C-Atomen ist, der insbesondere ausgewählt ist aus Acetoin, Ethylalkohol, Propylalkohol, iso-Propylalkohol, Propylenglykol und Glycerin und der hydrophile, nichtalkoholische GRAS-Aromastoff eine hydrophile organische GRAS-Aromasäure (ch) mit 1 bis 15 C-Atomen oder ein physiologisches Salz derselben, ein hydrophiles Acetat (eh) oder ein hydrophiler Aldehyd (hh) ist.
- 25. Verfahren nach Anspruch 24, wobei
 die hydrophile organische Säure (ch) 2 bis 10 C-Atome aufweist und insbesondere ausgewählt ist aus Essigsäure, Aconitsäure, Ameisensäure, Apfelsäure,
 Milchsäure, Phenylessigsäure, Citronensäure, Mandelsäure, Weinsäure, Fumarsäure, Tanninsäure, Hydrozimtsäure und deren physiologischen Salze;

WO 01/15528 PCT/EP00/08381

35

das hydrophile Acetat (e_h) ausgewählt ist aus Allicin, Triacetin, Kaliumacetat, Natriumacetat und Calciumacetat; und/oder

der hydrophile Aldehyd (h_h) ausgewählt ist aus Furfurol, Propionaldehyd und Vanillin.

5

26. Verfahren nach Anspruch 24, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung weniger als 50 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 30 Gew.-%, besonders bevorzugt weniger als 20 Gew.-% Benzylalkohol oder eines Gemisches von Benzylalkohol mit Ethanol und/oder Isopropanol enthält.

10

- 27. Verfahren nach Anspruch 24 oder 25, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung zwei lipophile GRAS-Aroma-Alkohole (a_i), jedoch kein Benzylalkohol und keine Polyphenolverbindungen (b) enthält.
- 15 28. Verfahren nach Anspruch 24 oder 25, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung Benzylalkohol und/oder eine Polyphenolverbindung (b), jedoch keine weiteren GRAS-Aroma-Alkohole enthält.
- 29. Verfahren nach Anspruch 27 oder 28, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre
 Zusammensetzung ausschließlich nichtalkoholische, hydrophile GRAS-Aromastoffe, insbesondere ausschließlich eine hydrophile GRAS-Aromasäure (ch) enthält.
- 30. Verfahren nach Anspruch 28 oder 29, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre
 Zusammensetzung
 - 0,01 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 90 Gew.-% Benzylalkohol oder Polyphenolverbindungen (b) und
 - 0,01 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 30 Gew.-% hydrophile, nicht-alkoholische GRAS-Aromastoffe

30 enthält.

31. Verfahren nach Anspruch 20 oder 21, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung

WO 01/15528 PCT/EP00/08381

36

- (A) einen oder mehrere GRAS-Aroma-Alkohole (a) oder deren Derivate und
- (B) einen oder mehrere Aromastoffe, ausgewählt aus Polyphenolverbindungen (b) und lipophile GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate (c) enthält.

5

15

- 32. Verfahren nach Anspruch 31, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung
 - 0,1 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 99 Gew.-%, Komponente (a),
 - 0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-%, Komponente (b) und
- 10 0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-%, Komponente (c) enthält.
 - 33. Verfahren nach Anspruch 31 oder 32, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung weitere GRAS-Aromastoffe, ausgewählt aus (d) Phenolen oder deren Derivate, (e_i) lipophilen Estern, (f) Terpenen, (g) Acetalen, (h_i) lipophilen Aldehyden und (i) etherischen Ölen.
 - 34. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 31 bis 33, wobei die Polyphenolverbindung (b) ausgewählt ist aus:
- Brenzcatechin, Resorcin, Hydrochinon, Phloroglucin, Pyrogallol, Cyclohexan, Resveratrol, Usninsäure, Acylpolyphenolen, Ligninen, Anthocyane, Flavonen, Catechinen, Gallussäurederivaten, Kaffesäure, Flavonoiden, Derivaten der genannten Polyphenole und Extrakten aus Camellia Primula und die lipophile GRAS-Säure (c) ausgewählt ist aus:
- Adipinsäure, Capronsäure, Pelagonsäure, Phenoxyessigsäure, Valeriansäure, iso-Valeriansäure, Zimtsäure, Mandelsäure und deren Derivate.
 - 35. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 31 bis 34, wobei die Komponente (A) der antimikrobiellen/antiparasitäre Zusammensetzung Benzylalkohol als notwendigen Bestandteil (a1) und gegebenenfalls einen oder mehrere weitere lipophile GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate (a_i) enthält.

WO 01/15528 PCT/EP00/08381

37

- 36. Verfahren nach Anspruch 34 oder 35, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung
 - 0,1 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 75 Gew.-% Benzylalkohol;
 - 0 bis 99,8 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 99 Gew.-% Komponente (a,); und
 - 0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-% Komponente (b),

5

- 0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-% Komponente (c) enthält.
- 37. Verfahren nach Anspruch 35 oder 36, wobei die Komponente (B) der antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung eine oder mehrere Polyphenolverbindungen (b) als notwendigen Bestandteil und gegebenenfalls (c) eine oder mehrere GRAS-Säuren oder deren Derivate enthält.
- 38. Verfahren nach Anspruch 36 oder 37, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre

 Zusammensetzung weitere lipophile GRAS-Aromastoffe (d) (i) enthält, vorzugsweise 0,001 bis 25 Gew.-% und besonders bevorzugt 0,01 bis 9 Gew.-%,
 der weiteren GRAS-Aromastoffe (d) (i).
- 39. Verfahren nach Anspruch 38, wobei die weiteren lipophilen GRAS-Aromastoffe
 20 Phenole (d) und/oder etherische Öle (i) sind.
 - 40. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 20 bis 39, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung keine Derivate der GRAS-Aromastoffe enthält.
 - 41. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 34 bis 40, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung ein oder zwei lipophile GRAS-Aroma-Alkohole (a_i) und wenigstens eine Polyphenolverbindung (b) enthält.
- 30 42. Verfahren nach Anspruch 41, wobei die Polyphenolverbindung (b) Tannin ist.
 - 43. Verfahren nach Anspruch 42, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung 20 -98 Gew.-% Benzylalkohol und 0,01 10 Gew.-% Tannin enthält.

WO 01/15528

- 44. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 43, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung weiterhin ein oder mehrwertige Alkohole mit 2 bis 10 C-Atomen, Emulgatoren, Stabilisatoren, Antioxidantien, Konservierungsmittel, Lösemittel und/oder Trägerstoffe enthält.
- 45. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 43, wobei die antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung ausschließlich aus GRAS-Aromastoffen besteht.

10

5

46. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 21, wobei die mikrobiologisch abbaubaren und/oder verderblichen Substanzen/Gegenstände ausgewählt sind aus Holz, Zellstoffen, Luftfiltern, Papier, Wolle, Baumwolle, Textilien usw.

15

47. Zusammensetzung zur Imprägnierung oder Oberflächenbehandlung von mikrobiologisch abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen/Gegenstände oder parasitär befallener Substanzen/Gegenstände, umfassend eine antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung, wie in den Ansprüchen 1 bis 45, vorzugsweise wie in den Ansprüchen 20 bis 45 definiert.

20

48. Zusammensetzung zur Einarbeitung in mikrobiologisch abbaubare, kontaminierbare und/oder verderbliche Substanzen/Gegenstände oder in die dem parasitären Befall zugängliche Substanzen/Gegenstände, umfassend eine antimikrobielle/antiparasitäre Zusammensetzung, wie in den Ansprüchen 1 bis 45, vorzugsweise wie in den Ansprüchen 20 bis 45 definiert.

30

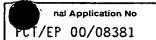
25

49. Verwendung einer antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung, wie in Anspruch 47 definiert, zur Oberflächenbehandlung von mikrobiologisch abbaubaren, kontaminierbaren und/oder verderblichen Substanzen/Gegenstände, von parasitär befallenen Substanzen/Gegenständen oder von Substanzen/Gegenständen, die selbstdekontaminierend sein müssen.

50. Verwendung einer antimikrobiellen/antiparasitären Zusammensetzung, wie in Anspruch 48 definiert, zum Einarbeiten in mikrobiologisch abbaubare, kontaminierbare und/oder verderbliche Substanzen/Gegenstände, in dem parasitären Befallen zugängliche Substanzen/Gegenstände oder in Substanzen/Gegenstände, die selbstdekontaminierend sein müssen.

	1,4.		
		er.	
			•
			•
			, <i>t</i>
			7

			101/11 00,	7 00301
A. CLASSII IPC 7	FICATION OF SUBJECT MATTER A01N31/04 A01N31/02			
According to	o International Patent Classification (IPC) or to both national classifica	ation and IPC		
B. FIELDS	SEARCHED			
Minimum do IPC 7	ocumentation searched (classification system followed by classification ${\sf A01N}$	on symbols)		
	tion searched other than minimum documentation to the extent that s		·	
1	lata base consulted during the international search (name of data batta, PAJ, EPO-Internal, CHEM ABS Data		i, search terms used)
C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		<u> </u>	
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the rel	evant passages		Relevant to claim No.
Х	WO 98 58540 A (SCHUER JOERG PETER 30 December 1998 (1998-12-30) the whole document	?)		1-49
Υ	the whole document			1-49
Y	WO 98 54971 A (ECOSMART TECHNOLOG 10 December 1998 (1998-12-10) page 4, line 9 -page 5, line 17 claims 1,3,4	GIES INC)		1-49
		- /		
X Fur	ther documents are listed in the continuation of box C.	X Patent family	members are listed	in annex.
*A' docum consi 'E' earlier filing 'L' docum which citatik 'O' docum other 'P' docum later	nent which may throw doubts on priority claim(s) or his cited to establish the publication date of another on or other special reason (as specified) ment reterring to an oral disclosure, use, exhibition or reans nent published prior to the international filing date but than the priority date claimed	cited to understal invention *X* document of partic cannot be consid involve an inventification of partic cannot be consid document is comments, such comin the art. *&* document membe	and not in conflict with and the principle or the cular relevance; the cered novel or cannot ive step when the docular relevance; the cered to involve an in bined with one or mobination being obviour of the same patent	the application but early underlying the stairmed invention be considered to curnent is taken alone claimed invention ventive step when the one other such docuus to a person skilled family
	e actual completion of the international search		the international sea	arch report
	21 December 2000	05/01/2	2001	
Name and	d mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl. Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer		



POSITIVE CONSIDERED TO BE BELEVANT	···
Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
DATABASE WPI Section Ch, Week 198946 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1989-337764 XPO02156082 & SE 8 900 902 A (THORSELL W), 13 May 1989 (1989-05-13)	1-49
abstract	1-49
US 5 814 325 A (ROD ROBERT L) 29 September 1998 (1998-09-29) claims 1-8	1-49
WO 96 29895 A (SCHUER JOERG PETER) 3 October 1996 (1996-10-03) the whole document	1-49
DATABASE WPI Section Ch, Week 198728 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class D13, AN 1987-196269 XP002156083 & JP 62 126931 A (MORINAGA MILK CO LTD), 9 June 1987 (1987-06-09) abstract	1-49
DATABASE WPI Section Ch, Week 199049 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class C03, AN 1990-361964 XP002156084 & CA 2 012 288 A (STERLING DRUG INC), 16 September 1990 (1990-09-16) abstract	1-49
US 4 446 161 A (FRIEDMAN HERMAN H ET AL) 1 May 1984 (1984-05-01) column 3, line 38 -column 4, line 24 column 5, line 60 -column 7, line 14	1-49
GB 1 060 447 A (MAPLE LEAF) page 1, line 40 -page 2, line 15	1-49
WO 00 03612 A (SCHUER JOERG PETER) 27 January 2000 (2000-01-27) the whole document	1-49
EP 0 103 878 A (HUMAN OLTOANYAGTERMELO) 28 March 1984 (1984-03-28) page 4, line 12 - line 23 page 6, line 1 -page 7, line 8	1-49
	DATABASE WPI Section Ch, Week 198946 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1989-337764 XP002156082 & SE 8 900 902 A (THORSELL W), 13 May 1989 (1989-05-13) abstract US 5 814 325 A (ROD ROBERT L) 29 September 1998 (1998-09-29) claims 1-8 W0 96 29895 A (SCHUER JOERG PETER) 3 October 1996 (1996-10-03) the whole document DATABASE WPI Section Ch, Week 198728 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class D13, AN 1987-196269 XP002156083 & JP 62 126931 A (MORINAGA MILK CO LTD), 9 June 1987 (1987-06-09) abstract DATABASE WPI Section Ch, Week 199049 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class O3, AN 1990-361964 XP002156084 & CA 2 012 288 A (STERLING DRUG INC), 16 September 1990 (1990-09-16) abstract US 4 446 161 A (FRIEDMAN HERMAN H ET AL) 1 May 1984 (1984-05-01) column 3, line 38 -column 4, line 24 column 5, line 60 -column 7, line 14 GB 1 060 447 A (MAPLE LEAF) page 1, line 40 -page 2, line 15 W0 00 03612 A (SCHUER JOERG PETER) 27 January 2000 (2000-01-27) the whole document EP 0 103 878 A (HUMAN OLTOANYAGTERMELO) 28 March 1984 (1984-03-28) page 4, line 12 - line 23 page 6, line 1 -page 7, line 8



PCT/EP 00/08381

Ition) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
FR 2 228 434 A (DELPECH LUCIEN) 6 December 1974 (1974-12-06) page 1, line 5 -page 2, line 5	1-49
-	
	FR 2 228 434 A (DELPECH LUCIEN) 6 December 1974 (1974–12–06)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

....ormation on patent family members

nat Application No PCT/EP 00/08381

Patent document ited in search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication date
NO 9858540	A	30-12-1998	DE	19726429	Α	24-12-1998
, , , , , , , , , , , , , , , , , ,			ΑŪ	8628798		04-01-1999
			BR	9810305		12-09-2000
			CN	1265006		30-08-2000
			EP	0991318		12-04-2000
			PL	337658		28-08-2000
			г <u>ь</u>	337056	<u>~</u>	20-00-2000
NO 9854971	Α	10-12-1998	US	6004569		21-12-1999
			AU	7251298		21-12-1998
			BR	9809945	Α	01-08-2000
			CN	1259018	T	05-07-2000
			ΕP	0991320	Α	12-04-2000
			JP 2	2000513027	T	03-10-2000
			NO	995902		07-02-2000
			PL	337222		14-08-2000
SE 8900902	Α	13-05-1989	SE	505244	С	21-07-1997
US 5814325	A	29-09-1998	US	5653991	Α	05-08-1997
00 001 .010	••	27 07 1770	WO	9905910		11-02-1999
			ÄŬ	4145297		22-02-1999
 WO 9629895	 A	03-10-1996	AU	5275096	^	
WU 9029093	^	03-10-1990	DE	19612340		07-11-1996
				0762837		19-03-1997
			EP			
			JP	10501445	 	10-02-1998
JP 62126931	Α	09-06-1987	JP	1994553	С	22-11-1995
			JP	7024544		22-03-1995
CA 2012288	Α	16-09-1990	NONE			
US 4446161	Α	01-05-1984	CA	1190787	Α	23-07-1985
GB 1060447	Α		BE	647875	Α	31-08-1964
			FR	1401489		13-10-1965
			NL	6405266		16-11-1964
WO 0003612	Α	27 - 01-2000	DE	19831288		27-01-2000
			DE	19831306		27-01-2000
			DE	19831309	Α	27-01-2000
			AU	5036699	Α	07-02-2000
EP 0103878	A	28-03-1984	AT	59298	T	15-01-1991
			DE	3382087		07-02-1991
FR 2228434		06-12-1974	NON!			

INTERNATIONALER RECWERCHENBERICHT

Aktenzeichen PCT/EP 00/08381

A. KLA	SSIFIZIERUNG DES	ANMELDU	NGSGEGEN	STANDES
IPK '	7 A01N31/	04 .	A01N31/	02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) $IPK\ 7\ A01N$

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

WPI Data, PAJ, EPO-Internal, CHEM ABS Data

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN					
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.			
Х	WO 98 58540 A (SCHUER JOERG PETER) 30. Dezember 1998 (1998-12-30)	1-49			
Υ	das ganze Dokument	1-49			
Y	WO 98 54971 A (ECOSMART TECHNOLOGIES INC) 10. Dezember 1998 (1998-12-10) Seite 4, Zeile 9 -Seite 5, Zeile 17 Ansprüche 1,3,4/	1-49			

 Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : 'A' Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist 	*T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden
E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist	Theorie angegeben ist 'x' Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung
L' Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer	kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Siehe Anhang Patentfamilie

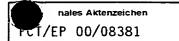
scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung.

eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht veröffentlichung eine Stellt um aber nach diese Verbindung für einen Fachmann naheligend ist diese Verbindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Effindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheligend ist verden, wenn die Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheligend ist verden, wenn die Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheligend ist verden, wenn die Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheligend ist verden verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheligend ist verden verbindung dieser kann naheligen dieser verbindung die verbindung dieser kategorie in Verbindung dieser kategorie in Verbindung dieser verbindung dieser kategorie in Verbindung dieser kategorie "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach

dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist	Verollentikatung, die winglied der seiden Falentiatrine ist
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
21. Dezember 2000	05/01/2001
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk	Bevollmächtigter Bediensteter
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Lamers, W

X



	TC1/	EP 00/08381
	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
Kategorie®	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teil	Betr. Anspruch Nr.
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 198946 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1989-337764 XP002156082 & SE 8 900 902 A (THORSELL W), 13. Mai 1989 (1989-05-13) Zusammenfassung	1-49
Y	Zusammerri assurig	1-49
Υ	US 5 814 325 A (ROD ROBERT L) 29. September 1998 (1998-09-29) Ansprüche 1-8	1-49
X	WO 96 29895 A (SCHUER JOERG PETER) 3. Oktober 1996 (1996-10-03) das ganze Dokument	1-49
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 198728 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class D13, AN 1987-196269 XP002156083 & JP 62 126931 A (MORINAGA MILK CO LTD), 9. Juni 1987 (1987-06-09) Zusammenfassung	1-49
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 199049 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1990-361964 XP002156084 & CA 2 012 288 A (STERLING DRUG INC), 16. September 1990 (1990-09-16) Zusammenfassung	1-49
X	US 4 446 161 A (FRIEDMAN HERMAN H ET AL) 1. Mai 1984 (1984-05-01) Spalte 3, Zeile 38 -Spalte 4, Zeile 24 Spalte 5, Zeile 60 -Spalte 7, Zeile 14	1-49
X	GB 1 060 447 A (MAPLE LEAF) Seite 1, Zeile 40 -Seite 2, Zeile 15	1-49
Ρ,Χ	WO 00 03612 A (SCHUER JOERG PETER) 27. Januar 2000 (2000-01-27) das ganze Dokument	1–49
Α	EP 0 103 878 A (HUMAN OLTOANYAGTERMELO) 28. Mārz 1984 (1984-03-28) Seite 4, Zeile 12 - Zeile 23 Seite 6, Zeile 1 -Seite 7, Zeile 8	1-49

INTERNATIONALER REFERENCHENBERICHT

Aktenzeichen
PCT/EP 00/08381

	ING) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	Betr. Anspruch Nr.
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit ertorderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	beir. Anspruch ivr.
A	FR 2 228 434 A (DELPECH LUCIEN) 6. Dezember 1974 (1974-12-06) Seite 1, Zeile 5 -Seite 2, Zeile 5	1-49
	·	

INTERNATIONALER ECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen.

er selben Patentfamilie gehören

nales Aktenzeichen

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9858540 A	30-12-1998	DE 19726429 A AU 8628798 A BR 9810305 A CN 1265006 T EP 0991318 A PL 337658 A	24-12-1998 04-01-1999 12-09-2000 30-08-2000 12-04-2000 28-08-2000
WO 9854971 A	10-12-1998	US 6004569 A AU 7251298 A BR 9809945 A CN 1259018 T EP 0991320 A JP 2000513027 T NO 995902 A PL 337222 A	21-12-1999 21-12-1998 01-08-2000 05-07-2000 12-04-2000 03-10-2000 07-02-2000 14-08-2000
SE 8900902 A	13-05-1989	SE 505244 C	21-07-1997
US 5814325 A	29-09-1998	US 5653991 A WO 9905910 A AU 4145297 A	05-08-1997 11-02-1999 22-02-1999
WO 9629895 A	03-10-1996	AU 5275096 A DE 19612340 A EP 0762837 A JP 10501445 T	16-10-1996 07-11-1996 19-03-1997 10-02-1998
JP 62126931 A	09-06-1987	JP 1994553 C JP 7024544 B	22-11-1995 22-03-1995
CA 2012288 A	16-09-1990	KEINE	
US 4446161 A	01-05-1984	CA 1190787 A	23-07-1985
GB 1060447 A		BE 647875 A FR 1401489 A NL 6405266 A	31-08-1964 13-10-1965 16-11-1964
WO 0003612 A	27-01-2000	DE 19831288 A DE 19831306 A DE 19831309 A AU 5036699 A	27-01-2000 27-01-2000 27-01-2000 07-02-2000
EP 0103878 A	28-03-1984	AT 59298 T DE 3382087 D	15-01-1991 07-02-1991
FR 2228434 A	06-12-1974	KEINE	

"INTERNATIONALER RECUERCHENBERICHT

Aktenzeichen PCT/EP v0/08381

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 A01N31/04 A01N31/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

WPI Data, PAJ, EPO-Internal, CHEM ABS Data

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
x	WO 98 58540 A (SCHUER JOERG PETER) 30. Dezember 1998 (1998-12-30)	1-49
Y	das ganze Dokument	1-49
Y	WO 98 54971 A (ECOSMART TECHNOLOGIES INC) 10. Dezember 1998 (1998-12-10) Seite 4, Zeile 9 -Seite 5, Zeile 17 Ansprüche 1,3,4/	1-49

X	Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen
لننا	entnenmen

- Siehe Anhang Patentfamilie X
- Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen
- A. Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er-scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
 P' Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist
- 'T' Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- '&' Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

21. Dezember 2000 Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016

05/01/2001

Bevollmächtigter Bediensteter

Lamers, W

INTERNATIONAL RECHERCHENBERICHT

err nales Aktenzelchen CT/EP 00/08381

Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.	
DATABASE WPI Section Ch, Week 198946 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1989-337764 XP002156082 & SE 8 900 902 A (THORSELL W), 13. Mai 1989 (1989-05-13)	1-49	
Zusammenfassung	1-49	
US 5 814 325 A (ROD ROBERT L) 29. September 1998 (1998-09-29) Ansprüche 1-8	1-49	
WO 96 29895 A (SCHUER JOERG PETER) 3. Oktober 1996 (1996-10-03) das ganze Dokument	1-49	
DATABASE WPI Section Ch, Week 198728 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class D13, AN 1987-196269 XP002156083 & JP 62 126931 A (MORINAGA MILK CO LTD), 9. Juni 1987 (1987-06-09) Zusammenfassung	1-49	
DATABASE WPI Section Ch, Week 199049 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1990-361964 XP002156084 & CA 2 012 288 A (STERLING DRUG INC), 16. September 1990 (1990-09-16) Zusammenfassung	1-49	
US 4 446 161 A (FRIEDMAN HERMAN H ET AL) 1. Mai 1984 (1984-05-01) Spalte 3, Zeile 38 -Spalte 4, Zeile 24 Spalte 5, Zeile 60 -Spalte 7, Zeile 14	1-49	
GB 1 060 447 A (MAPLE LEAF) Seite 1, Zeile 40 -Seite 2, Zeile 15	1–49	
WO 00 03612 A (SCHUER JOERG PETER) 27. Januar 2000 (2000-01-27) das ganze Dokument	1-49	
EP 0 103 878 A (HUMAN OLTOANYAGTERMELO) 28. Mārz 1984 (1984-03-28)	1-49	
	DATABASE WPI Section Ch, Week 198946 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1989-337764 XPO02156082 & SE 8 900 902 A (THORSELL W), 13. Mai 1989 (1989-05-13) Zusammenfassung US 5 814 325 A (ROD ROBERT L) 29. September 1998 (1998-09-29) Ansprüche 1-8 W0 96 29895 A (SCHUER JOERG PETER) 3. Oktober 1996 (1996-10-03) das ganze Dokument DATABASE WPI Section Ch, Week 198728 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class D13, AN 1987-196269 XPO02156083 & JP 62 126931 A (MORINAGA MILK CO LTD), 9. Juni 1987 (1987-06-09) Zusammenfassung DATABASE WPI Section Ch, Week 199049 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1990-361964 XPO02156084 & CA 2 012 288 A (STERLING DRUG INC), 16. September 1990 (1990-09-16) Zusammenfassung US 4 446 161 A (FRIEDMAN HERMAN H ET AL) 1. Mai 1984 (1984-05-01) Spalte 3, Zeile 38 -Spalte 4, Zeile 24 Spalte 5, Zeile 60 -Spalte 7, Zeile 14 GB 1 060 447 A (MAPLE LEAF) Seite 1, Zeile 40 -Seite 2, Zeile 15 WO 00 03612 A (SCHUER JOERG PETER) 27. Januar 2000 (2000-01-27) das ganze Dokument EP 0 103 878 A (HUMAN OLTOANYAGTERMELO)	

INTERNATIONALER RECEIRCHENBERICHT

Aktenzelchen
PCT/EP 00/08381

	ing) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	Date Appropriate M
Kategorie*	Bezeichnung der Veröttentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Α	FR 2 228 434 A (DELPECH LUCIEN) 6. Dezember 1974 (1974-12-06) Seite 1, Zeile 5 -Seite 2, Zeile 5	1-49
ļ		· ·
	·	
	·	

INTERNATIONALER_RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung.

zur selben Patenttamilie gehören

T/EP 00/08381

	lecherchenberich Irtes Patentdokun		Datum der Veröffentlichung		itglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO	9858540	Á	30-12-1998	DE	19726429	Α	24-12-1998
				AU	8628798	Α	04-01-1999
		•		BR		A	12-09-2000
				CN	1265006	Ť	30-08-2000
				EP	0991318		12-04-2000
				PL	337658		28-08-2000
					33/056	. 	28-08-2000
WO	9854971	Α	10-12-1998	US	6004569		21-12-1999
				AU	7251298	Α	21-12-1998
				BR	9809945	Α	01-08-2000
				CN	1259018	T	05-07-2000
				EP	0991320		12-04-2000
						Î	03-10-2000
				NO	995902		07-02-2000
				PL 	337222	A 	14-08-2000
SE	8900902	A	13-05-1989	SE	505244	С	21-07-1997
US	5814325	Α	29-09-1998	US	5653991	Α	05-08-1997
				WO	9905910		11-02-1999
				AU	4145297		22-02-1999
WO	9629895	Α	03-10-1996	AU	5275096		16-10-1996
			•	DE	19612340	Α	07-11-1996
				EP	0762837	Α	19-03-1997
				JP	10501445	T	10-02-1998
JP	62126931	Α	09-06-1987	 JР	1994553	С	22-11-1995
				JP	7024544		22-03-1995
CA	2012288	Α	16-09-1990	KEIN	IE .		
US	4446161	Α	01-05-1984	CA	1190787	A	23-07-1985
C P	1060447			 ВЕ	647875	Δ	31-08-1964
GD	1000777	• •		FR	1401489		13-10-1965
				NL	6405266		16-11-1964
				NL	0405200		10-11-1904
WO	0003612	Α .	27-01-2000	DE	19831288		27-01-2000
				DE	19831306		27-01-2000
				DE	19831309	Α	27-01-2000
				AU	5036699	Α	07-02-2000
EP	0103878	A	28-03-1984	AT	59298	 Т	15-01-1991
				DE	3382087		07-02-1991
·		~					
ED	2228434	Α	06-12-1974	KEIN	lF .		

INTERNATIO SEARCH REPORT

PCT/EP 00/08381

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 A01N31/04 A01N31/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC $\frac{7}{100}$ A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

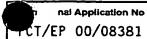
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

WPI Data, PAJ, EPO-Internal, CHEM ABS Data

Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
WO 98 58540 A (SCHUER JOERG PETER) 30 December 1998 (1998-12-30)	1-49
the whole document	1-49
WO 98 54971 A (ECOSMART TECHNOLOGIES INC) 10 December 1998 (1998-12-10) page 4, line 9 -page 5, line 17 claims 1,3,4	1-49
	·
	30 December 1998 (1998-12-30) the whole document WO 98 54971 A (ECOSMART TECHNOLOGIES INC) 10 December 1998 (1998-12-10) page 4, line 9 -page 5, line 17 claims 1,3,4

Special categories of cited documents: A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance.	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 E earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed 	 'X' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone 'Y' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. '&' document member of the same patent family
Date of the actual completion of the international search 21 December 2000	Date of mailing of the international search report 05/01/2001
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Lamers, W

INTERNA NAL SEARCH REPORT



<u> </u>	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE WPI Section Ch, Week 198946 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1989-337764 XPO02156082 & SE 8 900 902 A (THORSELL W), 13 May 1989 (1989-05-13) abstract	1-49
Υ	abstract	1-49
Y	US 5 814 325 A (ROD ROBERT L) 29 September 1998 (1998-09-29) claims 1-8	1-49
X	WO 96 29895 A (SCHUER JOERG PETER) 3 October 1996 (1996-10-03) the whole document	1-49
	DATABASE WPI Section Ch, Week 198728 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class D13, AN 1987-196269 XP002156083 & JP 62 126931 A (MORINAGA MILK CO LTD), 9 June 1987 (1987-06-09) abstract	1-49
X .	DATABASE WPI Section Ch, Week 199049 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class CO3, AN 1990-361964 XP002156084 & CA 2 012 288 A (STERLING DRUG INC), 16 September 1990 (1990-09-16) abstract	1-49
X	US 4 446 161 A (FRIEDMAN HERMAN H ET AL) 1 May 1984 (1984-05-01) column 3, line 38 -column 4, line 24 column 5, line 60 -column 7, line 14	1-49
X	GB 1 060 447 A (MAPLE LEAF) page 1, line 40 -page 2, line 15	1-49
Ρ,Χ	WO 00 03612 A (SCHUER JOERG PETER) 27 January 2000 (2000-01-27) the whole document	1-49
A	EP 0 103 878 A (HUMAN OLTOANYAGTERMELO) 28 March 1984 (1984-03-28) page 4, line 12 - line 23 page 6, line 1 -page 7, line 8 -/	1-49



pplication No PCT/EP 00/08381

C.(Continua	BLION) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category °	Chation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
A	FR 2 228 434 A (DELPECH LUCIEN) 6 December 1974 (1974-12-06) page 1, line 5 -page 2, line 5	1-49	
	·		
•			
•			
· ·			
	·		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

ation on patent family members

nat Application No

Patent docum nt ited in search report		Publication date	Patent fam m mber(s		Publication date
NO 9858540	Α	30-12-1998		429 A	24-12-1998
				798 A	04-01-1999
				305 A	12-09-2000
				006 T .	30-08-2000
				318 A	12-04-2000
			PL 337	658 A	28-08-2000
WO 9854971	Α	10-12-1998		569 A	21-12-1999
				298 A	21-12-1998
				945 A	01-08-2000
			CN 1259	018 T	05-07-2000
			EP 0991	320 A	12-04-2000
			JP 2000513	027 T	03-10-2000
			NO 995	902 A	07-02-2000
			PL 337	222 A	14-08-2000
SE 8900902	A	13-05-1989	SE 505	244 C	21-07-1997
 US 5814325	Α	29-09-1998		991 A	05-08-1997
			WO 9905	910 A	11-02-1999
			AU 4145	297 A	22-02-1999
WO 9629895	Α	03-10-1996	AU 5275	096 A	16-10-1996
			DE 19612	340 A	07-11-1996
			EP 0762	2837 A	19-03-1997
			JP 10501	.445 T	10-02-1998
JP 62126931	Α	09-06-1987		553 C	22-11-1995
			JP 7024	1544 B	22-03-1995
CA 2012288	Α	16-09-1990	NONE		
US 4446161	A	01-05-1984	CA 1190	787 A	23-07-1985
GB 1060447	Α			7875 A	31-08-1964
				1489 A	13-10-1965
			NL 6405	266 A	16-11-1964
WO 0003612	Α	27-01-2000		1288 A	27-01-2000
•			DE 19831	1306 A	27-01-2000
				1309 A	27-01-2000
			AU 5036	699 A	07-02-2000
EP 0103878	Α	28-03-1984		298 T	15-01-1991
			DE 3382	2087 D	07-02-1991
FR 2228434	Α	06-12-1974	NONE		